

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representation of  
The original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

WO 99/25196  
(EP 1 033 076 A1)  
Japanese

(51) 国際特許分類6 A01N 65/00, 25/06, C11B 9/00, A61L 9/01		A1	(11) 国際公開番号 WO99/25196 (43) 国際公開日 1999年5月27日(27.05.99)
(21) 国際出願番号 PCT/JP98/05141	(22) 国際出願日 1998年11月16日(16.11.98)	(81) 指定国 AU, CA, CN, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).	
(30) 優先権データ 特願平9/314988	1997年11月17日(17.11.97)	JP	添付公開書類 国際調査報告書
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 大正製薬株式会社 (TAISHO PHARMACEUTICAL CO., LTD.)[JP/JP] 〒170-8633 東京都豊島区高田3丁目24番1号 Tokyo, (JP)	(72) 発明者 ; および (75) 発明者／出願人 (米国についてのみ) 高木正洋(TAKAGI, Masahiro)[JP/JP] 〒852-8042 長崎県長崎市白鳥町10丁目1番102号 Nagasaki, (JP) 荻野和正(OGINO, Kazumasa)[JP/JP] 〒170-8633 東京都豊島区高田3丁目24番1号 大正製薬株式会社内 Tokyo, (JP)	(74) 代理人 弁理士 北川富造(KITAGAWA, Tomizo) 〒170-8633 東京都豊島区高田3丁目24番1号 大正製薬株式会社 特許部 Tokyo, (JP)	
<p>(54) Title: HEMATOPHAGOUS INSECT REPELLENT</p> <p>(54) 発明の名称 吸血害虫忌避剤</p> <p>(57) Abstract An indoor hematophagous insect repellent comprising either an indoor aromatic containing at least 5 wt.% of nootkatone, valencene or its mixture or an aerosol preparation containing at least 0.1 wt.% of the above ingredient and being excellent in safety and repellent effect.</p>			

(57)要約

ヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物を5重量%以上含有する室内芳香剤または0.1重量%以上含有するエアゾール剤とした、安全性および効果に優れた屋内空間用吸血害虫忌避剤を提供する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	ES スペイン	LI リヒテンシュタイン	SG シンガポール
AL アルバニア	FI フィンランド	LK スリ・ランカ	SI スロヴェニア
AM アルメニア	FR フランス	LR リベリア	SK スロヴァキア
AT オーストリア	GA ガボン	LS レソト	SL シエラ・レオネ
AU オーストラリア	GB 英国	LT リトアニア	SN セネガル
AZ アゼルバイジャン	GD グレナダ	LU ルクセンブルグ	SZ スワジラント
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE グルジア	LV ラトヴィア	TD チャード
BB バルバドス	GH ガーナ	MC モナコ	TG トーゴー
BE ベルギー	GM ガンビア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BF ブルガリア	GN ギニア	MG マダガスカル	TM タルクメニスタン
BG ブルガリア	GW ギニア・ビサオ	MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR トルコ
BJ ベナン	GR ギリシャ	共和国	TT トリニダッド・トバゴ
BR ブラジル	HR クロアチア	ML マリ	UA ウクライナ
BY ベラルーシ	HU ハンガリー	MN モンゴル	UG ウガンダ
CA カナダ	ID インドネシア	MR モーリタニア	US 米国
CF 中央アフリカ	IE アイルランド	MW マラウイ	UZ ウズベキスタン
CG コンゴ	IL イスラエル	MX メキシコ	VN ヴィエトナム
CH スイス	IN インド	NE ニジエール	YU ユーゴースラビア
CI コートジボアール	IS アイスランド	NL オランダ	ZA 南アフリカ共和国
CM カメルーン	IT イタリア	NO ノルウェー	ZW ジンバブエ
CN 中国	JP 日本	NZ ニュー・ジーランド	
CU キューバ	KE ケニア	PL ポーランド	
CY キプロス	KG キルギスタン	PT ポルトガル	
CZ チェコ	KP 北朝鮮	RO ルーマニア	
DE ドイツ	KR 韓国	RU ロシア	
DK デンマーク	KZ カザフスタン	SD スーダン	
EE エストニア	LC セントルシア	SE スウェーデン	

## 明細書

### 吸血害虫忌避剤

#### 技術分野

本発明はヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物を配合した屋内空間用吸血害虫忌避剤に関するものである。

#### 背景技術

夏期に発生する代表的な吸血害虫としてはアカイエカ、ヒトスジシマカ、チカイエカ等が知られており、一般家庭ではこれら害虫の吸血被害から逃れるために蚊取り線香、マット式および液体式電気蚊取りが汎用されている。これらの製剤は、燃焼あるいは加熱により有効成分を空中に揮散させて、蚊取り効果を発揮するものであるが、このような方法では就寝中も燃焼、加熱あるいは発煙をともなうことから、熱を加えないで容易に揮散する、シトラール、シトロネラールを含むテルペン系アルデヒド、リモネン、テルピネンを含むテルペン系炭化水素等の蚊取り効果のある香料組成物を利用する方法が提案されている（特開平3-285993号公報）。

しかしながら、蚊取り効果のある上記香料組成物を用いた製剤では、蚊取り効果および忌避効果は満足できるものではなかった。

#### 発明の開示

本発明者らは、揮発性テルペン系物質の吸血害虫に対する忌避効果を種々検討した結果、柑橘類精油中より見いだされ、飲料などのフレーバーに用いられるバレンセンおよびヌートカトンが、吸血害虫の忌避する

空間を作り出し、近年の代表的な忌避剤であるジエチルトルアミド（D E E T）および蚊取り効果のある香料組成物より高い忌避効果を有することを見いだし、これらの知見を基に本発明を完成した。

すなわち本発明は、ヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物を有効成分として含有することを特徴とする屋内空間用吸血害虫忌避剤を提供するものである。

本発明に用いるヌートカトンおよびバレンセンは、グレープフルーツ油等の天然物より一般のテルペン類の分離・精製法に準じて得られる化合物であり、有機合成などにより得られる化合物も用いることができる。

本発明の吸血害虫忌避剤は、蚊等の吸血害虫に対する忌避空間を作り出すものであり、通常は液状、固体状、ゲル状またはガス状の担体に保持させて、室内芳香剤、エアゾール剤、シート、塗料等に製剤化されて施用される。吸血害虫忌避剤中のヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物の配合量は、剤型および適用場所に応じて適宜決定し、特に制限されるわけではないが、ヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物による蚊の忌避効果は気中濃度に依存し、0.4  $\mu\text{g}/\text{cm}^3$ で効果を発現して0.7  $\mu\text{g}/\text{cm}^3$ 以上で優れた効果が得られることから、これらを気中濃度で0.4  $\mu\text{g}/\text{cm}^3$ 以上となるように製剤を調製することが望ましい。このような気中濃度を得るために、例えば室内芳香剤の場合には5重量%以上、エアゾール剤の場合には0.1重量%以上のヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物を配合することが好ましい。

また、本発明の吸血害虫忌避剤には、エンペントリン等のピレスロイド系殺虫剤、殺菌剤、防かび剤、酸化防止剤、着色料および調香のための各種香料成分等を配合することができる。

## 図面の簡単な説明

第1図は試験例1の方法を図示したものである。

## 発明を実施するための最良の形態

本発明にかかる吸血害虫忌避剤は、ヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物を一定濃度以上で存在させることにより、容易に安全性に優れた吸血害虫が忌避する空間を作ることができる。以下に実施例および試験例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。

## 実施例 1

ヌートカトン1 g、アルコール25 gを混合して耐圧容器にとり、噴射剤275 gを冷却または圧力充填し、噴射口を取り付けてエアゾール剤を得た。本エアゾールはタイマー付き自動噴霧装置に装着し、定時噴霧装置として用いることもできる。

## 実施例 2

ヌートカトン10g、アルコール80%水溶液60gおよび3-メトキシ-3-メチル-1-ブタノール40gを混合攪拌して液剤を得た。液剤を蓋付き密閉容器に充填し、棒状の吸液芯を蓋に差し込み液体の室内芳香剤を得た。

### 実施例 3

カラギーナン 2 g、ローカストビーンガム 0.5 g、プロピレングリコール 5 g に精製水 80 g を混合加熱して融解したものに、塩化ベンザルコニウム 0.1 g、インジゴカルミン 0.05 g およびヌートカトン

5 g を加え、容器に移して冷却成型し固形の室内芳香剤を得た。

#### 実施例 4

カラギーナン 1. 5 g、塩化カリウム 0. 25 g、3-メトキシ-3-メチル-1-ブタノール 15 g、塩化ベンゼトニウム 0. 1 g、タトラジン 0. 01 g に精製水 67. 14 g を混合加熱して融解したものに、硬化ヒマシ油 6 g、ヌートカトン 10 g を添加混合した後、容器に移して冷却成型し固形の室内芳香剤を得た。

#### 試験例 1

ヌートカトン、バレンセンおよび対照試料をアルコールに溶解した 10 % 溶液を調製し、直径 11 cm のろ紙（東洋漉紙株式会社）に 0. 1 ml 滴下する。次に図 1 に示すように、ヒトスジシマカヌス成虫が 20 頭入った壁面が柔軟なプラスチック網製のケージ（30 cm 四方）上部に貼付する。該ケージを内容積 45000 cm<sup>3</sup> のビニール袋に入れ、ケージの下に金網で固定したマウスを設置して、ビニール袋の口を閉じる。その後、吸血に飛来する蚊の数およびその行動を観察する。また、対照試料として蚊取り効果が知られているテルペン系アルデヒドのシトロネラオイルおよびゼラニウムオイル、代表的な忌避剤である D E E T を各々上記と同様に 0. 1 ml 滴下したろ紙を用いて試験した。ブランクとしては、アルコールのみを滴下したろ紙を用いた。表 1 に一定時間経過後に飛來した蚊の頭数を示す。

表 1. 吸血に飛来する蚊の頭数

試料	5 分後	10 分後
ヌートカトン	0	0
バレンセン	0	1
シトロネラオイル	10	8
ゼラニウムオイル	4	12
D E E T	3	5
ブランク	10	7

## 試験例 2

実施例 2 の室内芳香剤を連結された 3 個の容積 0.5 m<sup>3</sup> 試験箱の右側試験箱に設置する。左右の試験箱に金網で固定したマウスおよび水の入ったカップを入れて、中央の試験箱に 50 頭のアカイエカメスを放す。その後、各箱の蚊の頭数およびその行動を観察する。また、対照試料として蚊取り効果が知られているテルペン系アルデヒドのシトロネラオイルおよびゼラニウムオイル、代表的な忌避剤である D E E T を各々実施例 2 と同様にして調製した室内芳香剤を用いて試験した。ブランクとしては、アルコールのみで調製した室内芳香剤を用いた。表 2 には 1 時間後および 4 時間後の各試験箱中の蚊の頭数、表 3 には各試験箱に試験開始から 1 時間迄に飛來した蚊の頭数を示す。

表 2. 各試験箱中の蚊の頭数

試料	1 時間後			4 時間後		
	左	中	右	左	中	右
ヌートカトン	3 0	2 0	0	3 8	1 2	0
シトロネラオイル	2 3	1 8	9	2 0	1 6	1 4
ゼラニウムオイル	2 2	2 0	8	2 6	1 3	1 1
D E E T	2 5	1 5	1 0	2 5	8	1 7
ブランク	2 0	8	2 2	2 5	2	2 3

表 3. 各試験箱への蚊の飛来数

試料	左	中	右
ヌートカトン	9 5	5 6	2
シトロネラオイル	7 8	5 9	2 8
ゼラニウムオイル	8 5	6 2	2 1
D E E T	6 9	7 1	3 8
ブランク	8 2	7 1	7 9

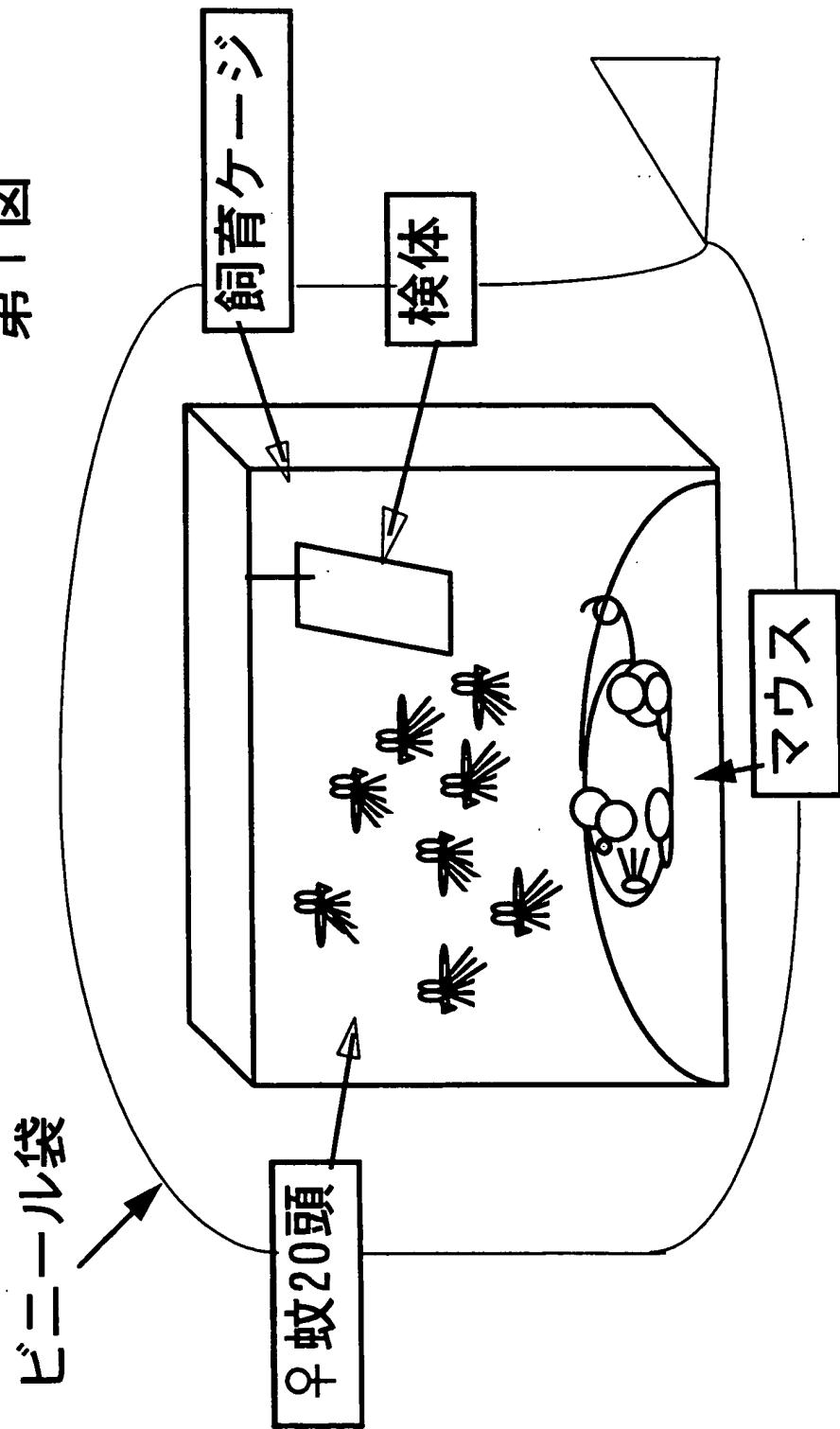
産業上の利用可能性

安全性および効果に優れた屋内空間用吸血害虫忌避剤を提供する。

## 請求の範囲

1. ヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物を有効成分として含有することを特徴とする屋内空間用吸血害虫忌避剤。
2. ヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物を 5 重量 % 以上配合したことを特徴とする室内芳香剤。
3. ヌートカトン、バレンセンまたはこれらの混合物を 0. 1 重量 % 以上配合したことを特徴とするエアゾール剤。

第1図



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/05141

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>6</sup> A01N65/00, A01N25/06, C11B9/00, A61L9/01

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>6</sup> A01N65/00, A01N25/06, C11B9/00, A61L9/01

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
CA (STN), REGISTRY (STN), WPI (DIALOG), BIOSIS (DIALOG), JICST File (JOIS)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP, 10-87409, A (Masashi Fujii), 7 April, 1998 (07. 04. 98), Claim 1 ; Par. Nos. [0002], [0004] to [0006] (Family: none)	1-3
X	JP, 6-303967, A (Kao Corp.), 1 November, 1994 (01. 11. 94), Par. Nos. [0002] to [0006] (Family: none)	2
X	JP, 59-31728, A (T. Hasegawa Co., Ltd.), 20 February, 1984 (20. 02. 84), Claim 1 ; page 1, lower right column to page 2, upper left column (Family: none)	2
Y	REIL, G., et al., "GENESIS OF AROMA COMPOUNDS IN PHOTOTROPHIC CELL CULTURE OF GRAPEFRUIT, CITRUS PARADISI CV. WHITE MARSH", Spec. Publ. R. Soc. Chem., 1996, No. 197, p97-104, page 97, INTRODUCTION, page 99, TABLE 1	2

 Further documents are listed in the continuation of Box C.  See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 5 February, 1999 (05. 02. 99)	Date of mailing of the international search report 16 February, 1999 (16. 02. 99)
--	--

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/05141

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	DEL RIO, J.A., et al., "Variations of Nootkatone and Valencene Levels during the Development of Grapefruit", J. Agric. Food. Chem., 1992, Vol. 40, No. 9, p1488-1490, page 1488, Abstract	2
A	JP, 8-81306, A (K.K. Tokiwa Kampo Seiyaku), 26 March, 1996 (26. 03. 96), Reference as a whole (Family: none)	1-3
A	JP, 64-83006, A (Taiyo Kagaku Co., Ltd.), 28 March, 1989 (28. 03. 89), Reference as a whole (Family: none)	1-3

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>6</sup> A01N65/00, A01N25/06, C11B9/00, A61L9/01

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>6</sup> A01N65/00, A01N25/06, C11B9/00, A61L9/01

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN), REGISTRY (STN),  
WPI (DIALOG), BIOSIS (DIALOG),  
JICSTファイル (JOIS)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P, X	J P, 10-87409, A (藤井 政志), 7. 4月. 1998 (07. 04. 98), 請求項1、【0002】、【0004】- 【0006】 (ファミリーなし)	1-3
X	J P, 6-303967, A (花王株式会社), 1. 11月. 19 94 (01. 11. 94), 【0002】-【0006】 (ファミ リーなし)	2
X	J P, 59-31728, A (長谷川香料株式会社), 20. 2 月. 1984 (20. 02. 84), 特許請求の範囲1、第1頁右 下欄-第2頁左上欄 (ファミリーなし)	2

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す  
もの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日  
以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行  
日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する  
文献 (理由を付す)  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって  
て出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理  
論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明  
の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以  
上の文献との、当業者にとって自明である組合せに  
よって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

05. 02. 99

## 国際調査報告の発送日

16.02.99

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

## 特許庁審査官 (権限のある職員)

鈴木 恵理子

4H 9636

印

電話番号 03-3581-1101 内線 3444

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
Y	REIL, G., et. al., "GENESIS OF AROMA COMPOUNDS IN PHOTOTROPHIC CELL CULTURE OF GRAPEFRUIT, CITRUS PARADISI CV. WHITE MARSH", Spec. Publ. R. Soc. Chem., 1996, No. 197, p97-104, 第97頁INTRODUCTION, 第99頁TABLE 1	2
Y	DEL RIO, J. A., et. al., "Variations of Nootkatone and Valencene Levels during the Development of Grapefruit", J. Agric. Food Chem., 1992, Vol. 40, No. 9, p1488-1490, 第1488頁Abstract	2
A	JP, 8-81306, A (株式会社トキワ漢方製薬), 26. 3月. 1996 (26. 03. 96), 文献全体 (ファミリーなし)	1-3
A	JP, 64-83006, A (太陽化学株式会社), 28. 3月. 1989 (28. 03. 89), 文献全体 (ファミリーなし)	1-3